Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/000295

International filing date: 13 January 2005 (13.01.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP

Number: 2004-379098

Filing date: 28 December 2004 (28.12.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 10 March 2005 (10.03.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in

compliance with Rule 17.1(a) or (b)



日本国特許庁 JAPAN PATENT OFFICE

17.01.2005

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application:

2004年12月28日

出 願 番 号 Application Number:

特願2004-379098

[ST. 10/C]:

[JP2004-379098]

出 願 人
Applicant(s):

三菱マテリアル株式会社 関西電力株式会社

特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office 2005年 2月24日





三菱マテリアル株式会

三菱マテリアル株式会

三菱マテリアル株式会

三菱マテリアル株式会

【書類名】 特許願 【整理番号】 04P05466 【あて先】 特許庁長官 殿 【国際特許分類】 H01M 8/02 【発明者】 【住所又は居所】 茨城県那珂郡那珂町向山1002-14 社 総合研究所那珂研究センター内 【氏名】 山田 喬 【発明者】 【住所又は居所】 茨城県那珂郡那珂町向山1002-14 社 総合研究所那珂研究センター内 【氏名】 山田 雅治 【発明者】 【住所又は居所】 茨城県那珂郡那珂町向山1002-14 社 総合研究所那珂研究センター内 タナー アクベイ 【氏名】 【発明者】 【住所又は居所】 茨城県那珂郡那珂町向山1002-14 社 総合研究所那珂研究センター内 【氏名】 星野 孝二 【発明者】 【住所又は居所】 茨城県那珂郡那珂町向山1002-14 三菱マテリアル株式会 社 総合研究所那珂研究センター内 【氏名】 宮澤 隆 【特許出願人】 【識別番号】 000006264 【氏名又は名称】 三菱マテリアル株式会社 【特許出願人】 【識別番号】 000156938 【氏名又は名称】 関西電力株式会社 【代理人】 【識別番号】 100096862 【弁理十】 【氏名又は名称】 清水 千春 【電話番号】 03-3543-0036 【先の出願に基づく優先権主張】 【出願番号】 特願2004- 9062 【出願日】 平成16年 1月16日 【手数料の表示】 【予納台帳番号】 057761 【納付金額】 16.000円

【提出物件の目録】

【物件名】

【物件名】

【物件名】

【物件名】

【包括委任状番号】

9802844

明細書 1

要約書 1

図面 1

特許請求の範囲 1

出証特2005-3014385

【書類名】特許請求の範囲

【請求項1】

発電セルと交互に積層配置され、その積層面に、反応用のガスを吐出するガス吐出口を 有する燃料電池用のセパレータであって、

上記ガス吐出口が上記積層面のほぼ全域に亘って複数設けられ、それらガス吐出口から 上記反応用のガスが上記発電セルに向けてシャワー状に吐出するようになっていることを 特徴とする燃料電池用のセパレータ。

【請求項2】

上記反応用のガスを受け入れる中空部を有し、当該中空部を介して上記反応用のガスが 上記ガス吐出口の各々に導かれるようになっていることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池用のセパレータ。

【請求項3】

上記中空部内に上記反応用のガスを導入するガス導入口を有し、当該ガス導入口の位置から放射状に延びる複数の仮想線に沿って、上記ガス吐出口がそれぞれ配列されていることを特徴とする請求項2に記載の燃料電池用のセパレータ。

【請求項4】

上記中空部内に上記反応用のガスを導入するガス導入口を有し、当該ガス導入口を中心とする複数の仮想同心円に沿って、上記ガス吐出口がそれぞれ配列されていることを特徴とする請求項2に記載の燃料電池用のセパレータ。

【請求項5】

上記積層面の中心部から放射状に延びる複数の仮想線に沿って、上記ガス吐出口がそれ ぞれ配列されていることを特徴とする請求項2に記載の燃料電池用のセパレータ。

【請求項6】

上記積層面の中央部に中心を有する複数の仮想同心円に沿って、上記ガス吐出口がそれ ぞれ配列されていることを特徴とする請求項2に記載の燃料電池用のセパレータ。

【請求項7】

上記反応用のガスを誘導する内部流路を有し、当該内部流路に沿って上記ガス吐出口が 設けられていることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池用のセパレータ。

【請求項8】

上記内部流路の上流側から下流側に向けて、上記ガス吐出口の穴径が大きくなるように 設定されていることを特徴とする請求項7に記載の燃料電池用のセパレータ。

【請求項9】

上記内部流路は、外周部に起点を有する螺旋状の流路であることを特徴とする請求項7 または8に記載の燃料電池用のセパレータ。

【請求項10】

上記内部流路は、上記積層面の径方向における一端から他端に向けて葛折り状に形成されていることを特徴とする請求項7または8に記載の燃料電池用のセパレータ。

【請求項11】

上記内部流路は、外周部のガス導入口から放射状に分岐する複数の流路によって構成されていることを特徴とする請求項7または8に記載の燃料電池用のセパレータ。

【請求項12】

上記中空部または上記内部流路の壁面にアルミニウムを拡散浸透させるアルミニウム拡散被膜処理を施して成ることを特徴とする請求項 $2\sim1$ 1までの何れかに記載の燃料電池用のセパレータ。

【請求項13】

発電セルとセパレータとを交互に積層してなる燃料電池スタックを有し、上記発電セル の各々に反応用のガスを供給して発電反応を生じさせる固体酸化物形燃料電池において、

上記セパレータとして、請求項1~12の何れかに記載のセパレータを用いたことを特徴とする固体酸化物形燃料電池。

【書類名】明細書

【発明の名称】燃料電池用セパレータおよび固体酸化物形燃料電池

【技術分野】

[0001]

本発明は、燃料電池用のセパレータおよびこれを用いた固体酸化物形燃料電池 (SOFC: Solid Oxide Fuel Cell) に関するものである。

【背景技術】

[0002]

周知のように、固体酸化物形燃料電池は第三世代の発電用燃料電池として研究開発が進められている。この固体酸化物形燃料電池の構造には、円筒型、モノリス型および平板積層型の3種類が現在のところ提案されているが、これら構造のうち、低温作動型の固体酸化物形燃料電池には、平板積層型の構造が広く採用されている。

[0003]

この平板積層型の固体酸化物形燃料電池においては、発電セルとセパレータとが、集電体を間に挟む状態で交互に積層されて燃料電池スタックが構成されている。

発電セルは、酸化物イオン伝導体からなる固体電解質層を空気極(カソード)層と燃料極(アノード)層との間に挟んだ積層構造を有する。この発電セルの空気極側には、酸化剤ガスとしての酸素(空気)が供給される一方、燃料極側には、燃料ガス(H₂、C H₄等)が供給されるようになっている。空気極と燃料極は、酸素および燃料ガスが固体電解質との界面に到達することができるように、いずれも多孔質とされている。

[0004]

一方、セパレータは、発電セル間を電気接続するとともに、発電セルに対して反応用のガスを供給する機能を有するもので、その外周部から燃料ガスを導入して燃料極層と対向する面から吐出させる燃料通路と、酸化剤ガスとしての空気を外周部から導入して空気極層と対向する面から吐出させる酸化剤通路とを備えている。このセパレータと発電セルの空気極との間には、Ag基合金等のスポンジ状の多孔質焼結金属板等からなる空気極集電体が配置され、セパレータと発電セルの燃料極との間には、Ni基合金等のスポンジ状の多孔質焼結金属板等からなる燃料極集電体が配置されている。

[0005]

上記構成からなる固体酸化物形燃料電池においては、セパレータおよび空気極集電体を介して発電セルの空気極側に供給された酸素が、空気極層内の気孔を通って固体電解質との界面近傍に到達し、この部分で、空気極から電子を受け取って酸化物イオン(O^{2-})にイオン化される。この酸化物イオンは、燃料極の方向に向かって固体電解質内を拡散移動する。燃料極との界面近傍に到達した酸化物イオンは、この部分で、燃料ガスと反応して反応生成物(H_2O 等)を生じ、燃料極に電子を放出する。この電子を燃料極集電体により取り出すことによって電流が流れ、所定の起電力が得られる。

[0006]

ところで、この種の固体酸化物形燃料電池の中には、発電セルの外周部のガス漏れ防止シール(従来では主にガラスシールが使用されている)を無くしたシールレス構造の固体酸化物形燃料電池がある。このシールレス構造の固体電解質型燃料電池においては、セパレータの中心部に燃料ガスや酸化剤ガス(反応用のガス)の吐出口を設けて、当該吐出口から吐出された反応用のガスを発電セルの外周方向に拡散させながら燃料極層及び空気極層の全面に良好な分布で行き渡らせて発電反応を生じさせるとともに、この発電反応によって生成されたガスや発電反応に使用されなかった残余のガスを、発電セルの外周部から外に放出するようになっている(例えば、特許文献1参照)。

【特許文献1】特開平11-016581号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

[0007]

しかしながら、上記シールレス構造の固体酸化物形燃料電池において、上述したように

、セパレータの中心部に反応用ガスの吐出口を設けた場合には、吐出口に近い中心部をピ ークとして外周部に向かうに連れてガス濃度が低下するという現象が発生し、その結果、 セル面内で電極反応が均一に行われずに、セル面内における電流密度分布に偏りが生じて 、発電セルの発電効率(単位面積当たりの出力密度)が著しく低下するという問題点があ った。また、発熱反応となる電極反応がセル面内において均一に行われないことにより、 発電セル内に温度勾配が生じ、その際の熱応力によって発電セルが破損する虞もあった。

[0008]

本発明は、かかる事情に鑑みてなされたもので、セル面内におけるガス濃度の均一化を 図ることができ、これによって、発電効率を向上させることができるとともに、セル面内 における温度を均一化して発電セルの破損を防止することができる燃料電池用セパレータ および固体酸化物形燃料電池を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

[0009]

請求項1に記載の発明は、発電セルと交互に積層配置され、その積層面に、反応用のガ スを吐出するガス吐出口を有する燃料電池用のセパレータであって、上記ガス吐出口が上 記積層面のほぼ全域に亘って複数設けられ、それらガス吐出口から上記反応用のガスが上 記発電セルに向けてシャワー状に吐出するようになっていることを特徴とするものである

$[0\ 0\ 1\ 0]$

請求項2に記載の発明は、請求項1に記載の燃料電池用のセパレータにおいて、上記反 応用のガスを受け入れる中空部を有し、当該中空部を介して上記反応用のガスが上記ガス 吐出口の各々に導かれるようになっていることを特徴とするものである。

[0011]

請求項3に記載の発明は、請求項2に記載の燃料電池用のセパレータにおいて、上記中 空部内に上記反応用のガスを導入するガス導入口を有し、当該ガス導入口の位置から放射 状に延びる複数の仮想線に沿って、上記ガス吐出口がそれぞれ配列されていることを特徴 とするものである。

$[0\ 0\ 1\ 2\]$

請求項4に記載の発明は、請求項2に記載の燃料電池用のセパレータにおいて、上記中 空部内に上記反応用のガスを導入するガス導入口を有し、当該ガス導入口を中心とする複 数の仮想同心円に沿って、上記ガス吐出口がそれぞれ配列されていることを特徴とするも のである。

[0013]

請求項5に記載の発明は、請求項2に記載の燃料電池用のセパレータにおいて、上記積 層面の中心部から放射状に延びる複数の仮想線に沿って、上記ガス吐出口がそれぞれ配列 されていることを特徴とするものである。

[0014]

請求項6に記載の発明は、請求項2に記載の燃料電池用のセパレータにおいて、上記積 層面の中央部に中心を有する複数の仮想同心円に沿って、上記ガス吐出口がそれぞれ配列 されていることを特徴とするものである。

[0015]

請求項7に記載の発明は、請求項1に記載の燃料電池用のセパレータにおいて、上記反 応用のガスを誘導する内部流路を有し、当該内部流路に沿って上記ガス吐出口が設けられ ていることを特徴とするものである。

[0016]

請求項8に記載の発明は、請求項7に記載の燃料電池用のセパレータにおいて、上記内 部流路の上流側から下流側に向けて、上記ガス吐出口の穴径が大きくなるように設定され ていることを特徴とするものである。

[0017]

請求項9に記載の発明は、請求項7または8に記載の燃料電池用のセパレータにおいて

、上記内部流路は、外周部に起点を有する螺旋状の流路であることを特徴とするものであ る。

[0018]

請求項10に記載の発明は、請求項7または8に記載の燃料電池用のセパレータにおい て、上記内部流路は、上記積層面の径方向における一端から他端に向けて葛折り状に形成 されていることを特徴とするものである。

[0019]

請求項11に記載の発明は、請求項7または8に記載の燃料電池用のセパレータにおい て、上記内部流路は、外周部のガス導入口から放射状に分岐する複数の流路によって構成 されていることを特徴とするものである。

[0020]

請求項12に記載の発明は、請求項2~11までの何れかに記載の燃料電池用のセパレ ータにおいて、上記中空部または上記内部流路の壁面にアルミニウムを拡散浸透させるア ルミニウム拡散被膜処理を施して成ることを特徴とするものである。

[0 0 2 1]

請求項13に記載の発明は、発電セルとセパレータとを交互に積層してなる燃料電池ス タックを有し、上記発電セルの各々に反応用のガスを供給して発電反応を生じさせる固体 酸化物形燃料電池において、上記セパレータとして、請求項1~12の何れかに記載のセ パレータを用いたことを特徴とするものである。

【発明の効果】

$[0\ 0\ 2\ 2]$

本発明によれば、セパレータの積層面のほぼ全域に亘って複数のガス吐出口が設けられ 、それらガス吐出口から反応用のガス(燃料ガス、酸化剤ガス)が発電セルに向けてシャ ワー状に吐出するようになっているので、セル面内におけるガス濃度を均一化することが できる。したがって、電極反応の偏りを抑制して、セル面内における電流密度を均一化す ることができ、これにより、単位面積当たりの出力密度を増大させて発電セル全体として の発電効率を大幅に向上させることができるとともに、セル面内における温度を均一化し て、熱応力による発電セルの破損を防止することができる。

[0023]

また、本発明によれば、反応用のガスに曝されるセパレータの中空部または内部流路の 壁面にアルミニウム拡散被膜処理を施したので、当壁面の耐高温腐食性は大幅に向上し、 酸化や浸炭によるセパレータの劣化を防止することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

[0024]

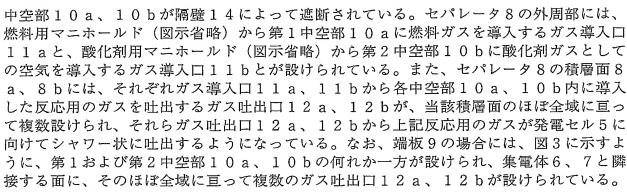
図1は、本発明に係る固体酸化物形燃料電池の一実施形態を示すもので、図中符号1は 燃料電池スタックである。この燃料電池スタック1は、図1に示すように、固体電解質層 2の両面に燃料極層3及び空気極層4を配した発電セル5と、燃料極層3の外側の燃料極 集電体6と、空気極層4の外側の空気極集電体7と、各集電体6、7の外側のセパレータ 8 (最上層及び最下層のものは端板9である)とを順番に積層した構造を持つ。この燃料 電池スタック1では、発電セル5の外周部にガス漏れ防止シールを敢えて設けないシール レス構造を採用している。

[0025]

ここで、固体電解質層 2 はイットリアを添加した安定化ジルコニア (YSZ) 等で構成 され、燃料極層3はNi、Co等の金属あるいはNi-YSZ、Co-YSZ等のサーメ ットで構成され、空気極層4はLaMnO3、LaCoO3等で構成され、燃料極集電体6 はNi基合金等のスポンジ状の多孔質焼結金属板で構成され、空気極集電体7はAg基合 金等のスポンジ状の多孔質焼結金属板で構成されている。

[0026]

セパレータ8は、ステンレス等により略円盤状に形成されている。このセパレータ8の 内部には、図2に示すように、第1および第2中空部10a、10bが設けられ、それら



[0027]

そして、本実施形態では、これら第1中空部10aや第2中空部10bの壁面には、その母材であるステンレス(鉄基合金)の表面にアルミニウム拡散被膜処理が施されている。このアルミニウム拡散被膜処理とは、母材表面にアルミニウムを拡散浸透させ、Fe-A1合金層を形成する金属表面処理のことであって、例えば、母材をFe-A1合金粉とNH4C1粉より成る調合剤とともに鋼製の密閉ケース内に埋め込み、加熱処理することにより行われる。このFe-A1合金層により、当壁面の耐高温酸化性、耐浸炭性は大幅に向上する。

[0028]

ガス吐出口12(12a、12b)の配列パターンとしては、例えば、図4~図7に示すような配列パターンを採用することが可能である。

図4のセパレータ8Aでは、ガス導入口11(11a、11b)の位置から放射状に延びる複数の仮想線L、或いはガス導入口11を中心とする複数の仮想同心円(円弧)Cに沿って、それぞれガス吐出口12が配列されている。すなわち、このセパレータ8Aでは、各仮想線Lと各仮想同心円Cとが交差する位置にガス導入口11が配置されている。このセパレータ8Aにおいては、隣接する仮想線Lどうしのなす角度が一定となるように設定されている。また、ガス導入口11には、穴径が大・中・小の3種類が用意されており、ガス導入口11から遠くなるに連れてガス吐出口12の穴径が大きくなるように設定されている。すなわち、各ガス吐出口12のガス吐出量がほぼ一定となるように各々の穴径が設定されている。

[0029]

また、図5のセパレータ8Bでは、図4のセパレータ8Aと同様、各仮想線Lと各仮想同心円Cとが交差する位置にガス導入口11が設けられている。この図5のセパレータ8Bでは、ガス導入口11とセパレータ8Bの中心点Pとを通る線分を第1線分11、この第1線分11と上記中心点Pで直交し且つ中空部10の直径に相当する長さを有する線分を第2線分12として、この第2線分12を等間隔に分割する分割点の各々を通るように、ガス導入口11の位置から放射状に複数の仮想線Lが引かれている。また、このセパレータ8Bにおいては、上記分割点から外周方向(中空部10の外周と仮想線Lとの交点の方向)に延びる補助線分H上にもガス導入口11が設けられている。

[0030]

他方、図6および図7のセパレータ8C、8Dでは、セパレータ8C、8Dの中心部から放射状に延びる複数の仮想線L、或いはセパレータ8C、8Dの中心部に中心を有する複数の仮想同心円Cに沿って、ガス吐出口12がそれぞれ配列されている。これらセパレータ8C、8Dにおいては、隣接する仮想線Lどうしのなす角度が一定となるように設定されるとともに、隣接する仮想同心円Cどうしの間隔が一定となるように設定されている。また、ガス導入口11には、穴径の大小異なる2種類のガス導入口が用意されており、上記第2線分12を境に2分割される領域のうちガス導入口11側の領域R1にあるガス吐出口12と、上記第2線分上のガス吐出口12には、穴径の小さいガス導入口が用いられ、ガス導入口11と反対側の領域R2にあるガス吐出口12には、穴径の大きいガス導



[0031]

また、セパレータ8としては、上述した中空部10a、10bの代わりに、例えば、図8~図10に示すように、反応用のガスを誘導する内部流路13を有し、当該内部流路13に沿ってガス吐出口12が設けられたセパレータを用いることも可能である。

図8のセパレータ8Eでは、内部流路13が、外周部に起点を有する螺旋状の流路となっており、図9のセパレータ8Fでは、内部流路13が、積層面の径方向における一端から他端に向けて葛折り状に形成されている。また、図10のセパレータ8Gにおいては、内部流路13が、外周部のガス導入口11から放射状に分岐する複数の流路によって構成されている。何れのセパレータ8E、8F、8Gにおいても、内部流路13の上流側から下流側に向けて、ガス吐出口12の穴径が段階的に大きくなるように設定されている。

また、これらのセパレータ8E、8F、8Gにおいても、その内部流路13の壁面には 、上記したアルミニウム拡散被膜処理が施されている。

[0032]

上記構成からなる固体酸化物形燃料電池においては、セパレータ外周部のガス導入口11aを介して燃料用マニホールドからセパレータ8の第1中空部10aに導入された燃料ガスが、セパレータ8の一方の積層面8aのほぼ全域に亘って設けられた多数のガス吐出口12aから、燃料極集電体6に向けてシャワー状に吐出されるとともに、セパレータ外周部のガス導入口11bを介して酸化剤用マニホールドからセパレータ8の第2中空部10bに導入された酸化剤ガスが、セパレータ8の他方の積層面8bのほぼ全域に亘って設けられた多数のガス吐出口12bから、空気極集電体7に向けてシャワー状に吐出される。その結果、燃料ガスおよび酸化剤ガスが燃料極層3および空気極層4の全面にそれぞれ均一な分布で行き渡り、セル面内において発電反応が均一に行われることとなる。

[0033]

以上のように、本実施形態によれば、セパレータ8の積層面のほぼ全域に亘って複数のガス吐出口12が設けられ、それらガス吐出口12から反応用のガス(燃料ガス、酸化剤ガス)が、集電体6、7およびその先に位置する発電セル5の各電極に向けてシャワー状に吐出するようになっているので、セル面内におけるガス濃度を均一化することができる。したがって、電極反応の偏りを抑制して、セル面内における電流密度を均一化することができ、これにより、単位面積当たりの出力密度を増大させて発電セル5全体としての発電効率を大幅に向上させることができるとともに、セル面内における温度を均一化して、熱応力による発電セル5の破損を防止することができる。

$[0\ 0\ 3\ 4\]$

なお、本実施形態においては、セパレータ8の積層面8a、8bの双方にガス吐出口12をそれぞれ複数設ける構成としたが、本発明はこれに限定されるものではなく、例えば、積層面の一方(燃料極側)にガス吐出口12を複数設けて他方の面(空気極側)の中心部にガス吐出口12を一つ設ける構成とすることも可能である。

【図面の簡単な説明】

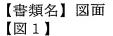
[0035]

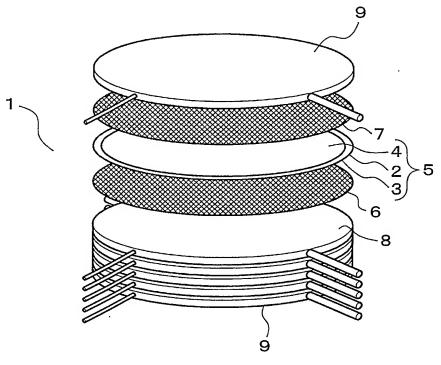
- 【図1】本発明に係る固体酸化物形燃料電池の要部構成を示す分解斜視図である。
- 【図2】図1のセパレータを示す縦断面図である。
- 【図3】図1の端板を示す縦断面図である。
- 【図4】ガス吐出口の配列パターンの一例を示す平面図である。
- 【図5】ガス吐出口の配列パターンの一例を示す平面図である。
- 【図6】ガス吐出口の配列パターンの一例を示す平面図である。
- 【図7】ガス吐出口の配列パターンの一例を示す平面図である。
- 【図8】図2のセパレータの変形例を示す平面図である。
- 【図9】図2のセパレータの変形例を示す平面図である。
- 【図10】図2のセパレータの変形例を示す平面図である。

【符号の説明】

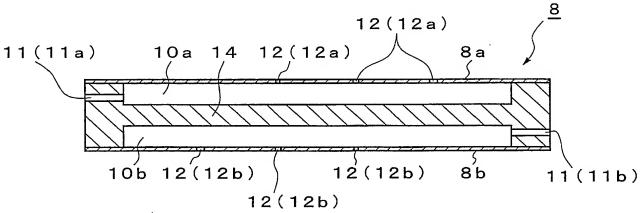
[0036]

- 1 燃料電池スタック
- 5 発電セル
- 8 (8A、8B、8C、8D、8E、8F、8G) セパレータ
- 10 (10a、10b) 中空部
- 11 (11a、11b)ガス導入口12 (12a、12b)ガス吐出口
- 13 内部流路

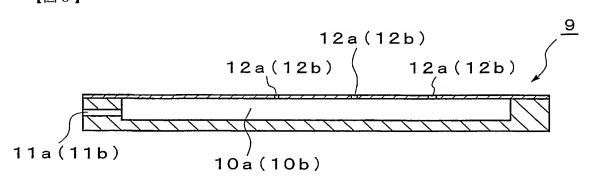




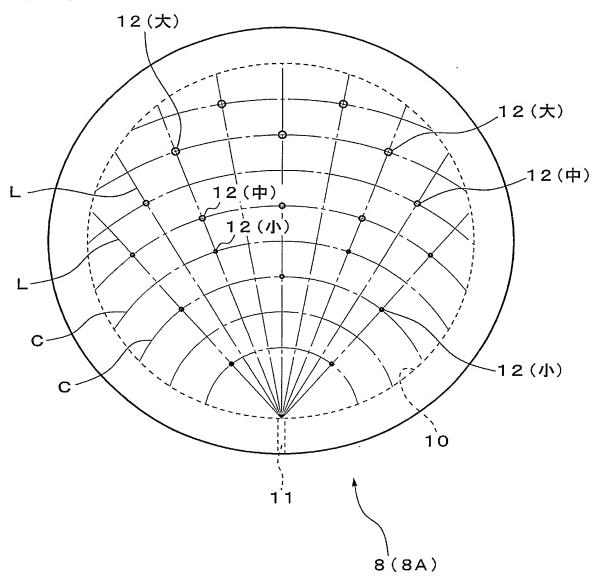
【図2】



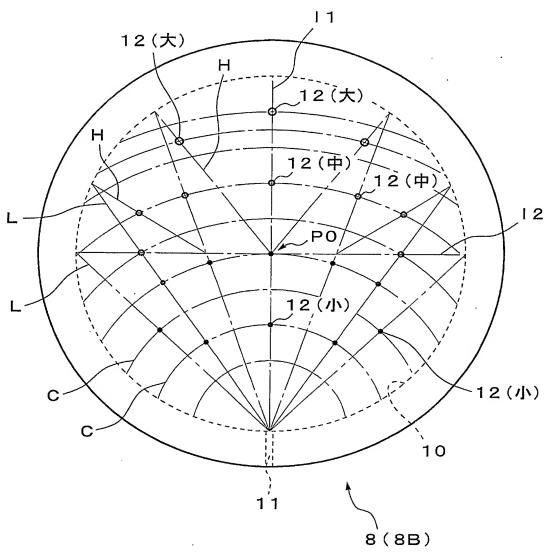
【図3】



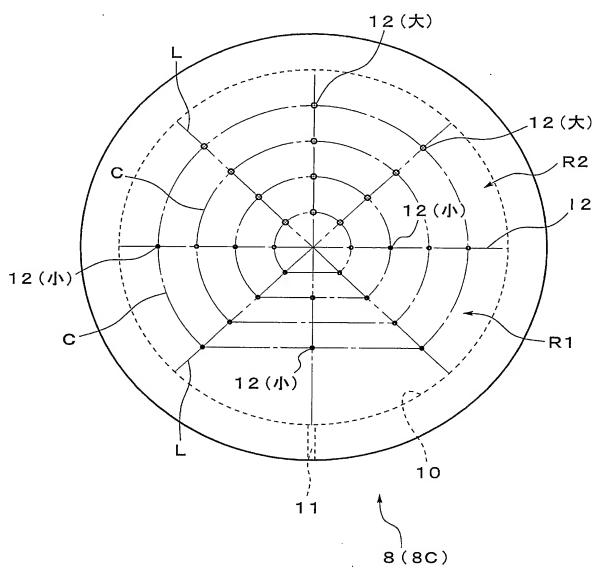




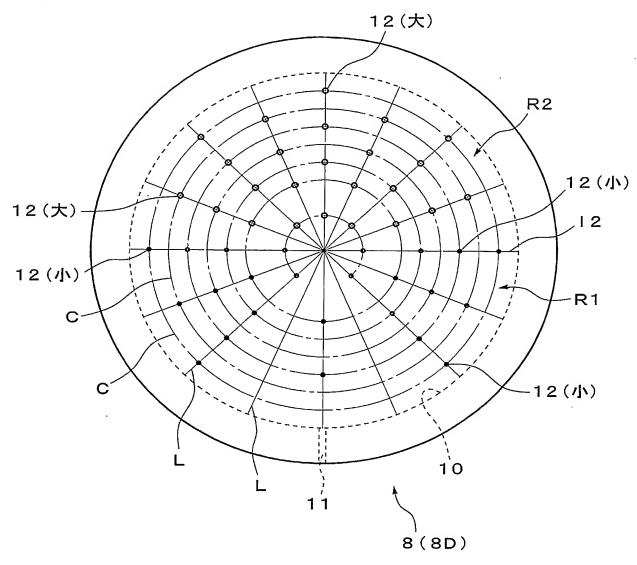




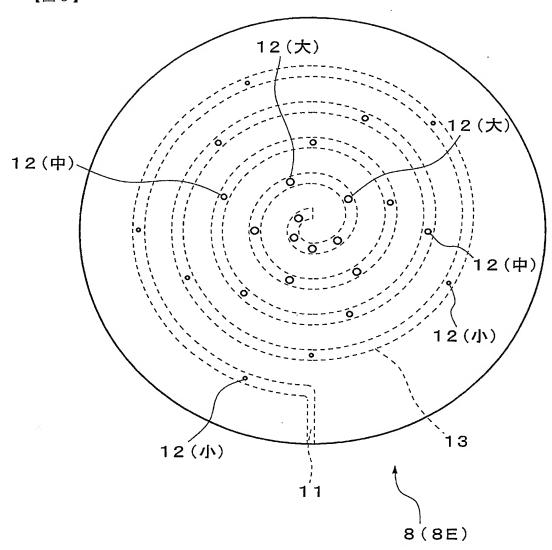


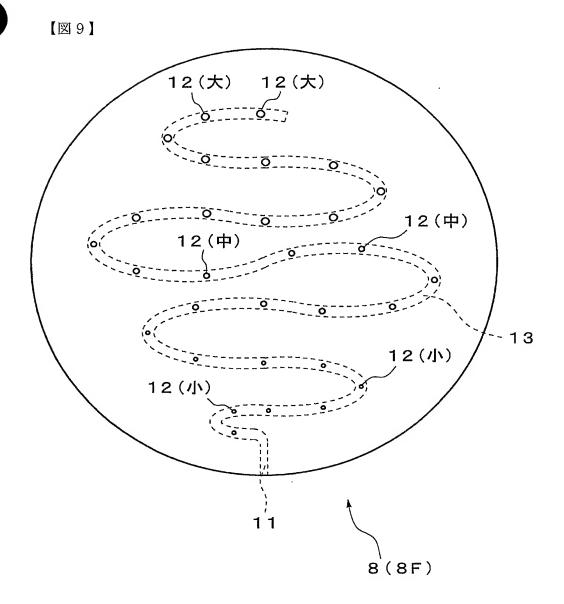


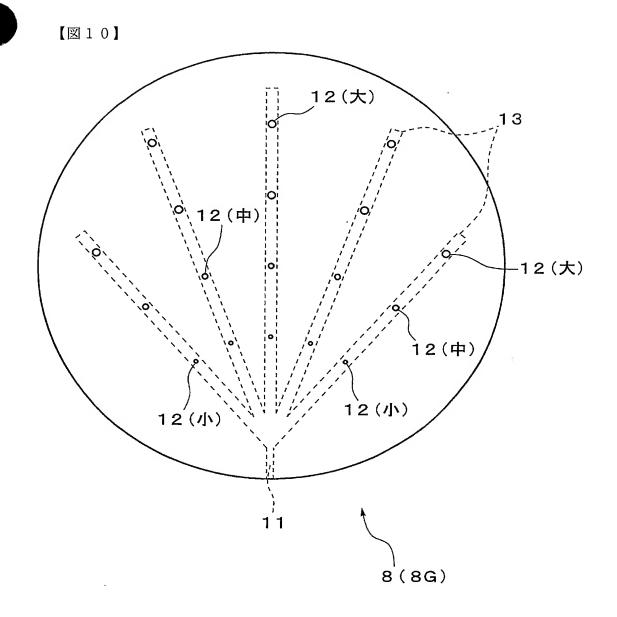














【要約】

【課題】セル面内におけるガス濃度の均一化を図ることができ、これによって、発電効率を向上させることができるとともに、セル面内における温度を均一化して発電セルの破損を防止することができる燃料電池用セパレータおよび固体酸化物形燃料電池を提供する。

【解決手段】発電セル5と交互に積層配置され、その積層面8a、8bに、反応用のガスを吐出するガス吐出口12を有する燃料電池用のセパレータ8である。ガス吐出口12が上記積層面のほぼ全域に亘って複数設けられ、それらガス吐出口12から反応用のガスが発電セル5に向けてシャワー状に吐出するようになっている。

【選択図】図2

特願2004-379098

出願人履歴情報

識別番号

[000006264]

1. 変更年月日

1992年 4月10日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都千代田区大手町1丁目5番1号

氏 名

三菱マテリアル株式会社

特願2004-379098

出願人履歷情報

識別番号

[000156938]

1. 変更年月日 [変更理由]

1990年 8月10日

住 所 氏 名 新規登録 大阪府大阪市北区中之島3丁目3番22号

関西電力株式会社

2. 変更年月日 [変更理由]

2005年 1月24日

住所変更

住 所 氏 名

大阪府大阪市北区中之島三丁目6番16号

関西電力株式会社